



УКРАЇНА

(19) UA (11) 79646 (13) C2
(51) МПК (2006)
B01J 8/00
B01J 8/02
C07C 45/38 (2007.01)
F28D 9/00

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ
І НАУКИ УКРАЇНИ

ДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ

ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(54) СПОСІБ ПРОВЕДЕННЯ ВИСОКЕОКЗОТЕРМІЧНИХ ОКИСНИХ РЕАКЦІЙ В ПСЕВДОІЗОТЕРМІЧНИХ УМОВАХ

1

(21) а200504638
(22) 08.09.2003
(24) 10.07.2007
(86) PCT/EP2003/009931, 08.09.2003
(31) 02023316.9
(32) 17.10.2002
(33) EP
(46) 10.07.2007, Бюл. №10, 2007р.
(72) Філіппі Ерманно, ІТ, Різзі Енріко, ІТ, Тароззо Мірко, ІТ, Клейтон Кіт А., СА
(73) АММОНІЯ КАСАПЕ С.А., СН
(56) FR 2029533A, 23.10.1970
(57) 1. Спосіб проведення високоекзотермічних окисних реакцій у псевдоізотермічних умовах між реагентами, що безперервно подають у потоці в шар (L) каталізатора, який **відрізняється** тим, що щонайменше частину безперервного потоку реагентів подають в масу шару (L) каталізатора із різною заданою температурою та з різною витратою в різні точки маси каталізатора, що відповідають різним стадіям реакції, яка протікає у шарі (L) каталізатора.
2. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що реагенти подають у шар (L) каталізатора через розподільники (20, 22), які розташовані в різних точках, що безпосередньо відповідають різним стадіям реакції окислення, безперервний потік реагентів розділяють на першу частину, або основний потік, і другу частину, або потік, яким регулюють витрату реагентів, що мають певну температуру, першу частину, або основний потік, реагентів попередньо нагрівають у відповідним чином закріплених в шарі (L) каталізатора теплообмінниках (10) шляхом теплообміну з шаром (L) каталізатора, безперервно

2

подають основний потік попередньо нагрітих реагентів у шар (L) каталізатора, другу частину потоку реагентів подають у розподільники (20, 22) та інжектують з них потоки свіжих реагентів при певній температурі та з певною витратою в шар (L) каталізатора.

3. Апарат для проведення високоекзотермічних окисних реакцій у псевдоізотермічних умовах способом за п. 1, що містить декілька теплообмінників (10), який **відрізняється** тим, що кожний теплообмінник зв'язаний щонайменше з одним розподільником (20, 22) безперервного потоку реагентів, що подаються в шар каталізатора при певній температурі з певною витратою.

4. Апарат за п. 3, який **відрізняється** тим, що щонайменше один розподільник (20, 22) нерухомо закріплений на відповідному теплообміннику (10).

5. Апарат за п. 4, який **відрізняється** тим, що теплообмінник (10) має плоску прямокутну форму з першою внутрішньою камерою (18), через яку проходить потік реагентів, що нагріваються попередньо, і другою внутрішньою камерою (19), що герметично відділена від першої внутрішньої камери (18) та з'єднана щонайменше з одним розподільником (20, 22).

6. Апарат за п. 5, який **відрізняється** тим, що розподільник (20, 22) виконаний у вигляді закріпленої на стінці відповідного плоского теплообмінника (10) пластини коробчастої форми, що разом зі стінкою утворює канал, який з одного боку з'єднаний із другою внутрішньою камерою (19) теплообмінника (10), а з іншого боку через велику кількість виконаних у пластині отворів виходить із теплообмінника (10) назовні.

Даний винахід стосується способу проведення екзотермічних хімічних реакцій у псевдоізотермічних умовах. У наступній частині опису й у формулі винаходу під псевдоізотермічними умовами ма-

ються на увазі умови, при яких температуру реакції підтримують у вузькому діапазоні з невеликими відхиленнями від заданої оптимальної величини. Винахід стосується, зокрема, способу проведення

(13) C2

(11) 79646

(19) UA

в псевдоізотермічних умовах високоекзотермічних каталітичних реакцій типу окисних реакцій, наприклад, реакції окислення аміаку з одержанням азотної кислоти та реакції окислення метанолу з одержанням формальдегіду. Даний винахід стосується також хімічного апарата, що призначений для здійснення зазначеного вище способу.

Добре відомо, що при проведенні високоекзотермічних окисних реакцій, щоб уникнути виникнення в реакторі небезпечних для роботи умов, необхідно постійно контролювати та регулювати один або декілька робочих параметрів процесу, що протікає в реакторі, таких як температура реакції та концентрація щонайменше одного з реагентів, що беруть участь у реакції. Так, наприклад, при одержанні формальдегіду шляхом окислення метанолу при високій концентрації реагентів і високій екзотермічності реакції в реакторі швидко виникають вибухонебезпечні умови, що потребують точного контролю та підтримування концентрації реагентів і температури реакції на рівні, що менший певних гранично допустимих значень. Крім того, коли температура реакції та концентрація реагентів стають вище цих гранично допустимих значень, у реакторі може відбутися "отруєння" та втрата каталітичної активності каталізатора й неминуче зниження виходу реакції. Таке явище характерно, зокрема, для реакції окислення аміаку з одержанням азотної кислоти, коли при заданій температурі та концентрації реагентів більше певної порогової величини, каталізатор на основі Co_3O_4 у результаті швидкого відновлення перетворюється в CoO , що має меншу в порівнянні з Co_3O_4 каталітичну активність.

Для контролю температури й концентрації реагентів при проведенні подібних реакцій було запропоновано використовувати реактори з псевдозрідженим шаром. Такі реактори, однак, мають багато досить істотних недоліків, пов'язаних, зокрема, з дуже високим споживанням енергії, яка необхідна для подачі в реактор великої кількості повітря та підтримування концентрації аміаку нижче порогу вибуховості, з більш складною конструкцією, ніж у реакторів з нерухомим шаром каталізатора, та з проблемами пилотування.

Крім того, рух каталізатора в реакторах із псевдозрідженим шаром прискорює процес корозії стінок реактора.

В основу даного винаходу було покладено завдання розробити спосіб проведення високоекзотермічних окисних реакцій у псевдоізотермічних умовах між реагентами, що безперервно подаються в потоці в шар каталізатора, що не мав би зазначених вище недоліків, які властиві відомим способам, або, іншими словами, забезпечував би можливість роботи в умовах, що виключають можливість виникнення вибуху в суміші реагентів й у суміші реагентів із продуктами реакції, та дозволяв би збільшити термін служби каталізатора.

Зазначене вище завдання вирішується відповідно до винаходу за допомогою запропонованого в ньому способу, який відрізняється тим, що щонайменше частину безперервного потоку реагентів подають у реактор з різною заданою температурою та з різною витратою в різні, що відповідають

різним стадіям реакції, точки шару каталізатора, у яких реагенти мають низьку концентрацію.

У випадку, що не обмежує обсяг винаходу, використання псевдоізотермічного реактора з вертикальною віссю й реагентами, що проходять через каталізатор в осьовому напрямку, різні стадії реакції протікають у різних за висотою ділянках шару каталізатора, у які з заданою витратою й заданою температурою подають реагенти.

Більш докладно відмітні риси та переваги пропонуваного в даному винаході способу розглянуті нижче на прикладі одного з варіантів його можливого здійснення з посиланням на прикладені до опису креслення, що ілюструють але не обмежують обсяг винаходу.

На прикладених до опису кресленнях показано:

на Фіг.1 - схема хімічного реактора, що призначений для здійснення пропонуваного у винаході способу, та

на Фіг.2 - схема в збільшеному масштабі одного з елементів реактора, що показаний на Фіг.1.

На Фіг.1 схематично показаний позначений позицією 1 хімічний реактор з вертикальною віссю, який призначений для проведення високоекзотермічних реакцій, наприклад, окисних реакцій типу реакції окислення аміаку з одержанням азотної кислоти.

Реактор 1 має циліндричний корпус 2, закритий із протилежних кінців нижнім і верхнім днищами 3 та 4. На верхньому днищі 4 розташований люк 5, а в нижньому днищі 3 виконаний отвір 6 для виведення з реактора продуктів реакції.

Корпус 2 утворює розташовану між нижньою та верхньою площинами 8 та 9 зону 7 реакції, у якій знаходиться шар (L) каталізатора, через який в осьовому напрямку проходять газоподібні реагенти та продукти реакції.

Елементи, що несуть шар (L) каталізатора, добре відомі й тому не показані на кресленні та не потребують докладного опису.

У шарі (L) каталізатора розташовано декілька відповідним чином закріплених у реакторі теплообмінників 10 та розподільників 12 реагентів, при цьому теплообмінники 10 мають плоску прямокутну форму та розташовані бажано концентрично в декількох радіальних площинах навколо осі корпусу з паралельними щодо осі довгими сторонами 11.

У кращому варіанті здійснення даного винаходу кожен теплообмінник 10 нерухомо з'єднаний із двома розподільниками 12 реагентів і є для них, як докладніше описано нижче, відповідною опорою.

Так, зокрема, як показано на Фіг. 2, кожен теплообмінник 10 має дві стінки 27 та 28, що прилягають одна до одної своїми краями, які з'єднані між собою за периметром, наприклад, зварюванням, і утворюють першу, розташовану між ними камеру 18.

Поруч із боковим боком 11 теплообмінника 10 виконаний зварний шов 25 з паралельними та перпендикулярними щодо бокового боку 11 теплообмінника ділянками 32 та 33, які утворюють усередині теплообмінника між сторонами 27 та 28

другу камеру 19, яка герметично відділена від першої камери 18.

Камера 18 має вхідний патрубок 29 і вихідний патрубок 31, а камера 19 має тільки один вхідний патрубок 34.

На стінці 27 теплообмінника 10 закріплені дві пластини 20 та 22 коробчастої форми, які проходять перпендикулярно щодо бокового боку 11 теплообмінника за всією його шириною.

Пластини 20 та 22 разом зі стінкою 27 утворюють канали 21 та 23, які з одного боку через виконані в стінці 27 отвори 36 та 37 з'єднані з другою камерою 18, а з іншого боку виходять із теплообмінника 10 назавні в шар (L) каталізатора через виконані в пластинах отвори 26.

Отвори 26 у пластинах (20, 22) бажано повинні бути розташовані на одній лінії в напрямку поздовжньої осі пластини.

Закріплені на теплообмінниках 10 пластини 20 та 22 коробчастої форми утворюють розподільники 12 рідини, що попадає в них з камери 18.

Теплообмінники 10 разом з відповідними розподільниками 12 утворюють пропонований в даному винаході пристрій, що дозволяє регулювати температуру та концентрацію реагентів у шарі (L) каталізатора, про що докладніше сказано нижче.

Реактор 1 має також трубопроводи 13 та 14 для подачі відповідних реагентів, з'єднані з камерами 18 та 19 кожного теплообмінника 10 трубами 15 та 16 і відповідними патрубками 30 та 35, і колектори 17 для продуктів реакції, які з'єднані з одного боку з вихідними патрубками 31 теплообмінників, а з іншого боку - з розташованим на осі реактора центральним каналом 24.

Нижче розглянутий пропонуваний у винаході спосіб проведення в описаному вище реакторі високоекзотермічних хімічних реакцій у псевдоізо-термічних умовах з одночасним регулюванням і підтриманням температури реакції та концентрації реагентів у певних межах з невеликими відхиленнями від заданих значень.

Потік реагентів, що безперервно подається у реактор 1, наприклад, аміаку та кисню, з яких у реакторі одержують азотну кислоту, розділяють на вході в реактор на дві частини.

Першу, або основну, частину потоку реагентів попередньо нагрівають до температури, при якій у результаті теплообміну з шаром (L) каталізатора починається необхідна реакція (окислення аміаку), для чого, зокрема, основну частину потоку реагентів через розподільник 12 і труби 15 та патрубки 30 подають у камери 18 всіх теплообмінників 10.

Попередньо нагріті реагенти, що виходять з теплообмінників 10, збираються в колекторі 20 та проходять до нижнього кінця центрального каналу 24. Попередньо нагріті реагенти, що виходять з верхнього кінця центрального каналу 24 розподіляються та проходять через шар (L) каталізатора, у якому при цьому починається необхідна високо-екзотермічна окисна реакція.

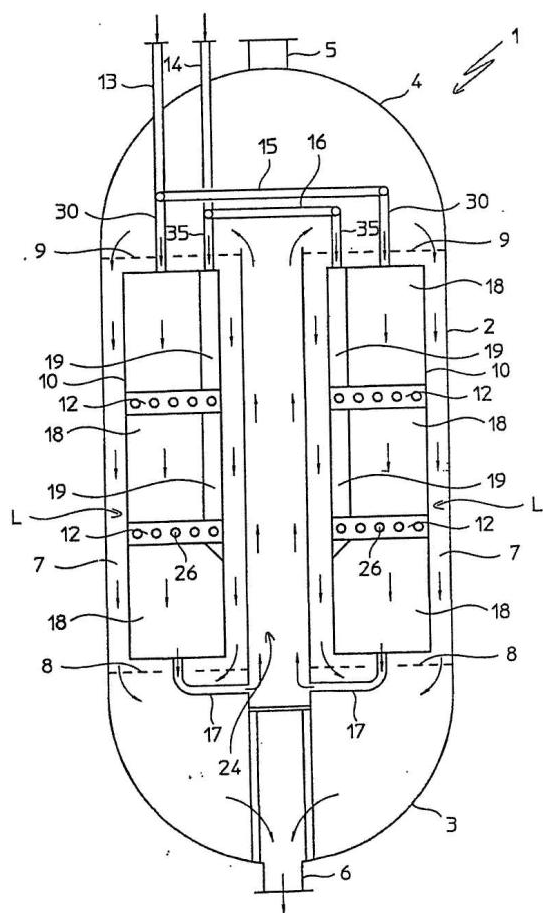
Другу частину потоку реагентів, якою регулюють температуру реакції та концентрацію реагентів, розділяють між всіма камерами 18 теплообмінників 10, з яких цей потік реагентів попадає у відповідні пари розподільників 19, 20.

Як вже було сказано вище, розподільники 19, 20 розташовані в масі шару (L) каталізатора на різних за висотою рівнях відповідно з різними стадіями реакції, що протікає в шарі каталізатора, і дозволяють регулювати концентрацію та температуру реагентів на відповідних стадіях реакції.

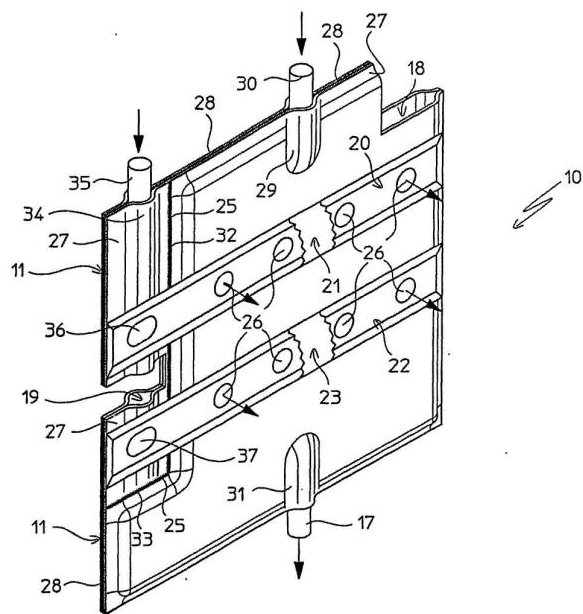
У даному винаході таке регулювання концентрації реагентів і температури реакції здійснюється регулюванням витрати другої частини реагентів звичайними та добре відомими способами й подачею свіжих реагентів у певні точки шару катализатора.

Продукти реакції відбирають із реактора 1 через отвір 6.

Даний винахід не обмежений описаним вище варіантом його здійснення й не виключає можливості внесення в нього різних змін й удосконалень в обсязі формули винаходу.



ФІГ. 1



ФІГ. 2